



7

①9 BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENT- UND
MARKENAMT

⑫ **Patentschrift**
⑩ **DE 100 57 862 C 1**

⑤1 Int. Cl.⁷:
F 01 N 3/027

②1 Aktenzeichen: 100 57 862.4-13
②2 Anmeldetag: 21. 11. 2000
④3 Offenlegungstag: -
④5 Veröffentlichungstag
der Patenterteilung: 7. 2. 2002

Innerhalb von 3 Monaten nach Veröffentlichung der Erteilung kann Einspruch erhoben werden

⑦3 Patentinhaber:
Siemens AG, 80333 München, DE

⑥1 Zusatz in: 101 30 163.4

⑦2 Erfinder:
Birckigt, Rudolf, 91077 Neunkirchen, DE; Hammer,
Thomas, Dr., 91334 Hemhofen, DE; Kishimoto,
Tetsuo, Dr., 91056 Erlangen, DE

⑤6 Für die Beurteilung der Patentfähigkeit in Betracht
gezogene Druckschriften:

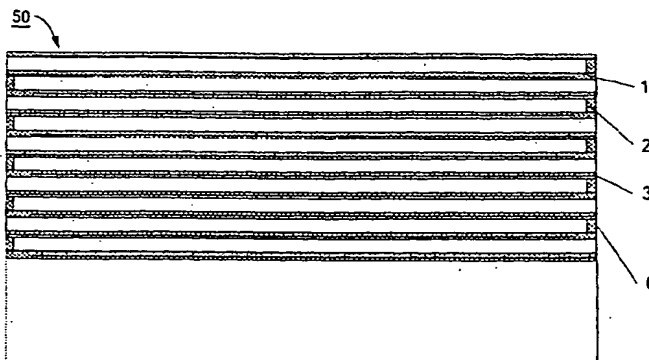
DE	198 26 831 A1
DE	197 17 890 A1
DE	100 07 130 A1
DE	34 24 196 A1
DE	21 46 228 A1
FR	27 71 449 A
US	49 79 364 A
EP	03 41 832 B1
EP	03 32 609 B1
EP	08 24 376 A1
EP	07 31 875 A1
EP	06 35 625 A1
EP	06 27 263 A1
WO	99 38 603 A1
WO	91 03 631 A1

SAE-PAPER Nr. 1999-01-3637

"Feasibility of Plasma Aftertreatment for
simultaneous Control of NO_x and Particulates;

⑤4 Verfahren zur Verminderung kohlenstoffhaltiger Partikelemissionen von Dieselmotoren und zugehörige
Anordnung

⑤7 Bei einem bekannten Verfahren zur Verminderung kohlenstoffhaltiger Partikelemissionen von Dieselmotoren strömt das vom Motor emittierte Abgas durch einen Filter, wobei die im Abgas enthaltenen Partikel an Filteroberflächen abgeschieden werden und zwecks Regeneration des Filters die abgeschiedenen Partikel oxidiert werden. Erfindungsgemäß erfolgt die Regeneration durch nicht-thermische, elektrische Oberflächengleitentladungen an den mit Partikeln belegten Oberflächen. Bei einer Anordnung zur Durchführung des Verfahrens ist ein keramischer Rußfilter mit Mitteln zum Oxidieren der am keramischen Filter abgeschiedenen Partikel vorhanden, wobei die Mittel zum Oxidieren der Rußpartikel elektrische Oberflächengleitentladungen an der Keramik des Filters bereitstellen. Ebenfalls angegeben werden die Kombination mit Verfahren zur selektiven katalytischen Reduktion von Stickoxiden und die dafür erforderlichen Anordnungen.



DE 100 57 862 C 1

DE 100 57 862 C 1

[0001] Die Erfindung bezieht sich auf ein Verfahren zur Verminderung kohlenstoffhaltiger Partikelemissionen von Dieselmotoren, wobei das vom Motor emittierte Abgas durch ein Filter strömt, die im Abgas enthaltenen Partikel an Filteroberflächen abgeschieden und wobei zwecks Regeneration des Filters die abgeschiedenen Partikel oxidiert werden. Daneben bezieht sich die Erfindung auch auf eine zugehörige Anordnung zur Durchführung des Verfahrens, mit einem keramischen Rußfilter und Mitteln zur Oxidation der am keramischen Filter abgeschiedenen Partikel.

[0002] Lungengängiger Ruß ist nach aktuellen Erkenntnissen gesundheitsschädlich, evtl. sogar karzinogen. Gerade die aus Gründen der Kraftstoffökonomie interessanten direkteinspritzenden Pkw-Diesel-Motoren emittieren jedoch lungengängige Partikel.

[0003] Eine seit längerem vorgeschlagene Lösung des Problems könnte in regenerierbaren Partikelfiltern bestehen, die jedoch zur Regeneration bei niedrigen Abgastemperaturen ein Additiv wie z. B. Cer, Na-Sr-Gemisch oder Fe-Sr-Gemisch im Kraftstoff benötigen, das als Katalysator für die Rußoxidation wirkt (FR 2 771 449 A). Solche Katalysatoren wirken z. B. dadurch, dass sie erst selbst oxidiert werden und den Sauerstoff dann an den Ruß übertragen.

[0004] Im praktischen Einsatz werden die Oxide durch den Ruß jedoch nur teilweise reduziert, so dass im langfristigen Betrieb das Problem der Filterbeladung mit Katalysatorasche auftritt. Zusätzliche Probleme ergeben sich bei schwefelhaltigen Kraftstoffen durch katalytisch geförderte Sulfatbildung. Weiterhin kann im Stadtverkehr das Problem auftreten, dass die Abgastemperatur trotz katalytischem Additiv für eine Regeneration nicht ausreicht.

[0005] Eine rein thermische Regeneration hingegen scheitert aus, da dafür kurzzeitig Betriebspunkte des Motors mit stark erhöhter Abgastemperatur gefahren oder elektrische Maßnahmen zur Aufheizung des Filters getroffen werden müssen. Die EP 0 635 625 A1 offenbart zu diesem Zweck eine Mikrowellenheizung der Filterkeramik, EP 0 731 875 einen elektrisch beheizten Oxidationskatalysator zum Rußabbau. Jede dieser rein thermischen Maßnahmen ist mit einem stark erhöhten durchschnittlichen Kraftstoffverbrauch verbunden. Zusätzlich kann es bei der durch diese Maßnahmen ausgelösten Verbrennung des Rußes lokal zu einem Durchbrennen des Rußfilters und damit zu seiner Zerstörung kommen.

[0006] Durch Kombination dieser beiden Maßnahmen kann eine Verbesserung erreicht werden, die jedoch nicht das Problem löst, dass sich der Filter mit Katalysatoraschen zusetzt. Weiterhin kann es unter extremen Umständen (Kurzstrecken-Fahrten im Stadtverkehr) immer noch zu so niedrigen Abgas-Temperaturen kommen, dass eine Regeneration des Filters trotzdem nicht möglich ist.

[0007] Zur Lösung der Probleme mit Rußemissionen sind in der Vergangenheit mehrfach Plasmaverfahren vorgeschlagen oder untersucht worden, die sich folgendermaßen klassifizieren lassen:

(a) Partikel werden durch Behandlung mit einer Sprühentladung elektrisch geladen, elektrostatisch abgeschieden und auf dem Substrat durch Plasmaverfahren, evtl. unter Zusatz eines Katalysators im Kraftstoff oder im Substrat, oxidiert (EP 0 332 609 B1, WO 91/03631 A1, US 4,979,364 A; EP 0 627 263 A1, DE 21 46 228 A1).

(b) Partikel werden durch Behandlung mit einer Sprühentladung agglomeriert und durch einen Zylkon abgeschieden (DE 34 24 196 A1 und

EP 0 824 376 A1), wo sie z. B. thermisch entsorgt werden.

(c) Partikel werden in einem dielektrischen Festbett aus einem Granulat, in einem Faserverbund (Filtz) oder in einem porösen Material (Keramikschaum o. a.) als Filter abgeschieden. In dieser porösen Struktur wird ein nichtthermisches Plasma gebrannt, das die Oberflächen kontinuierlich regeneriert (WO 99/38603 A1).

(d) Eine plasmainduzierte Regeneration von Rußfiltern kann auch dadurch erreicht werden, dass in einem nichtthermischen Plasma NO zu NO₂ oxidiert wird, das schon bei niedrigen Temperaturen unter Oxidation des Rußes wieder zu NO reduziert wird. Bei ausreichenden Abgastemperaturen kann statt des Plasmas auch ein Oxidationskatalysator verwendet werden (DE 198 26 831 A1 sowie EP 341 832 B1).

(e) Partikel werden durch Trägheitskräfte auf Strukturelektroden eines DBE-Reaktors (DBE = dielektrisch behinderte Entladungen) abgeschieden und dort durch nichtthermische Plasmaeinwirkung oxidiert (DE 100 07 130 A0).

(f) Partikel werden beim Durchströmen einer als Filter wirkenden porösen Keramik zurückgehalten und durch Einwirkung eines DBE-Plasmas oxidiert (DE 197 17 890 A1). Das DBE-Plasma wird erfindungsgemäß zwischen einer mit einer Barriere-schicht versehene Gegenelektrode und einer mit der Filterkeramik verbundenen gasdurchlässigen Elektrode oder einer Filterkeramik hinreichender elektrischer Leitfähigkeit als Elektrode gebildet.

[0008] Zu diesen Verfahren ist folgendes anzumerken:

Ad a) Die elektrostatische Abscheidung von Partikeln erfordert zwei Plasmareaktoren – einen ersten zur elektrischen Aufladung der Partikel proportional zu ihrer Masse, und einen zweiten zur elektrostatischen Abscheidung sowie katalytischen oder plasmainduzierten Oxidation. In einem kraftfahrzeugtauglichen, kompakten Aufbau lässt sich diese Funktion nicht sicher gewährleisten. Es besteht die Gefahr unkontrollierter Abscheidung der Partikel an Stellen im Abgasstrang, an denen ihre Oxidation nicht gewährleistet ist. Damit kann es zu schlagartiger, unkontrollierter Freisetzung großer Partikelmengen kommen (re-entrainment).

Ad b) Auch bei der elektrostatischen Agglomeration kann nicht gewährleistet werden, dass die Partikel hinterher kontrolliert abgeschieden werden. Damit ergibt sich die gleiche Problematik wie bei der elektrostatischen Abscheidung in (a).

Ad c) Die Rußabscheidung in kontinuierlich plasmaregenerierten porösen Strukturen zeigt gute Wirkung. Hier ergeben sich jedoch Probleme mit der mechanischen Standfestigkeit der porösen Struktur im Kraftfahrzeugeinsatz (Granulat, Fasermaterial) oder mit dem Staudruck (Keramikschaume).

Ad d) Die kontinuierliche Rußfilterregeneration durch ein vorgeschaltetes Plasma arbeitet im Prinzip, erfordert aber die Anwesenheit ausreichender NO-Mengen im Abgas und ist energetisch unvorteilhaft (B. M. Penetrante et al.: Feasibility of Plasma Aftertreatment for Simultaneous Control of NO_x and Particulates; SAE paper no 1999-01-3637).

Ad e) Aufgrund der Durchgängigkeit der Elektrodenstruktur für das Abgas ergibt sich zwar ein niedriger Staudruck, und ein Zusetzen des Abgasreinigungselementes durch feste Ablagerungen ist nicht zu erwarten. Da jedoch Trägheitskräfte mit sinkender Masse abneh-

men, folgen leichte Partikel weitgehend der Gasströmung und werden deshalb unzureichend abgeschieden. Ad f) Bei dielektrisch behinderten Entladungen wird ein wesentlicher Teil der Leistung im Volumen umgesetzt. Der Rest der elektrischen Leistung kann auf elektrisch isolierenden Oberflächen wie der dielektrischen Beschichtung im sogenannten Fußpunkt des sich bei Atmosphärendruck ausbildenden Entladungsfilamentes umgesetzt werden. Im Falle einer elektrisch leitfähigen porösen Filterkeramik bildet sich ein solcher Fußpunkt deshalb nur auf dem Dielektrikum der gasundurchlässigen Gegenelektrode aus. Bekanntermaßen haben chemisch aktive Radikale wie der aus Luftsauerstoff gebildete atomare Sauerstoff O und das aus Wasser gebildete Hydroxyl-Radikal OH in Abgas eine sehr kurze Lebensdauer von unter 200 μ s. Dadurch besteht nur eine geringe Wahrscheinlichkeit, dass im Volumen gebildete Radikale den auf der Filterkeramik abgeschiedenen Ruß oxidieren. Dies reduziert den Wirkungsgrad der Plasmaregeneration. Außerdem engen die vorgeschlagenen Elektrodengeometrien den Strömungsquerschnitt der einzelnen Filterkanäle stark ein. Um den Staudruck des plasmaregenerierten Filters niedrig zu halten, ist gegenüber Filtern ohne diese Elektrodenstrukturen eine Vergrößerung des Volumens erforderlich.

[0009] Aufgabe der Erfindung ist es daher, ein Verfahren und eine zugehörige Anordnung anzugeben, mit denen die Partikelemissionen von Dieselmotoren wirksamer als bisher unschädlich gemacht werden.

[0010] Die Aufgabe ist erfindungsgemäß bei einem Verfahren der eingangs genannten Art durch die Maßnahmen des Patentanspruches 1 gelöst. Zugehörige Weiterbildungen sind Gegenstand der abhängigen Ansprüche. Eine Anordnung zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens ist Gegenstand des Patentanspruches 15. Diesbezügliche Weiterbildungen der Anordnung sind in den abhängigen Sachansprüchen angegeben.

[0011] Im Folgenden wird sowohl in der Beschreibung als auch in den Ansprüchen der Terminus "nichtthermische Oberflächengleitentladung" verwendet. Wenn nicht ausdrücklich anders gesagt ist auch mit den Begriffen "Oberflächengleitentladung" und "Gleitentladung" dieser Terminus gemeint. Er soll zur Abgrenzung zu anderen Formen elektrischer Gasentladungen hier näher definiert werden: Bei der "nichtthermischen Oberflächengleitentladung" handelt es sich im Folgenden

um eine im Kontakt mit einer i. a. elektrisch isolierenden (oder nur schwach leitfähigen) Oberfläche brennenden elektrische Gasentladung
zur Erzeugung eines "nichtthermischen Plasmas"
unter weitgehender Vermeidung einer Gasaufheizung.

[0012] Das "nichtthermische Plasma" hebt sich vom "thermischen Plasma" dadurch ab, dass der Plasmazustand thermodynamisch nicht durch eine Temperatur beschrieben werden kann und dass die mittlere Energie der Elektronen wesentlich größer ist als die der Schwerteilchen (Ionen, Atome, Moleküle). Bei Atmosphärendruck lassen sich nichtthermische Plasmen z. B. durch elektrische Gasentladungen erzeugen, bei denen die Energie-Einkopplung auf sehr kurze Zeiten begrenzt ist. Dadurch können Elektronen Moleküle ionisieren, elektronisch anregen und spalten (dissoziieren), ohne dass dabei die Gastemperatur nennenswert erhöht wird. Oberflächengleitentladungen brennen bei At-

mosphärendruck häufig als Funken, bei denen jedoch Brenndauer und Leistungsdichte so hoch sind, dass schon substantielle Gasaufheizung auftritt. Diese Form der Oberflächengleitentladung ist hier explizit ausgeschlossen.

[0013] Mit der Erfindung wird ein Verfahren vorgeschlagen, das die Abscheidung von Ruß durch keramische Rußfilter kombiniert mit der Regeneration der Filter durch nichtthermische Oberflächengleitentladungen. Die dem Stand der Technik entsprechenden keramischen Rußfilter gewährleisten bekanntermaßen einen hohen Abscheidewirkungsgrad auch feiner Partikel. Durch die Oberflächengleitentladungen wird die elektrische Energie in unmittelbarer Nähe zum abgeschiedenen Ruß für die Bildung oxidierender Radikale eingesetzt. Dadurch ergibt sich eine hohe Reaktionswahrscheinlichkeit für diese Radikale mit dem Ruß und somit auch ein hoher energetischer Wirkungsgrad.

[0014] Die für das erfindungsgemäße Verfahren erforderlichen Elektrodenstrukturen lassen sich (a) beide in die Filterwände einbetten, (b) auf gegenüberliegenden Seiten der Filterwände als Oberflächenelektrode anbringen, (c) wechselseitig als eingebettete und als Oberflächenelektrode gestalten. Dies ermöglicht einen niedrigen Strömungswiderstand bei kompaktem Aufbau des Filterelementes.

[0015] Die Filterwände bestehen erfindungsgemäß aus einem feinporigen keramischen Material niedriger elektrischer Leitfähigkeit. Dadurch wirkt die Filterwand als dielektrische Barriere, die einen direkten Stromfluss unterbindet. Deshalb wird ein Betrieb mit einer zeitlich veränderlichen Hochspannung entweder in Form einer Wechselspannung oder in Form einer zeitlich repetierenden Impulsspannung vorgeschlagen. Die in Oberflächengleitentladungen umgesetzte mittlere elektrische Leistung ergibt sich aus dem Produkt $E_{dis} \times f$ von pro Puls oder pro Periode dissipierter elektrischer Energie E_{dis} und Puls wiederholrate oder Frequenz f . Die dissipierte Energie E_{dis} steigt mit steigender Spannungsamplitude U_0 . Die Impulsspannung ist dadurch gekennzeichnet, dass die Dauer des Spannungsimpulses klein gegenüber der durch die Pulsrepetitionsfrequenz gegebenen Periode ist. Dadurch wird die Energie gezielt in die Erzeugung nichtthermischer Oberflächengasentladungen eingekoppelt und die übermäßige Dissipation elektrischer Energie durch die Restleitfähigkeit der Filterkeramik und durch leitfähige Rußbeläge des Filters vermieden.

[0016] Die Elektrodenstrukturen lassen sich durch Einbettung von Drähten aus duktilen Materialien wie Kupfer oder Nickel bei der Produktion des Filters erzeugen. Zur Vermeidung von energiereichen Funkenüberschlägen durch die poröse Filterkeramik können die Elektrodenstränge mit einer Barrierenschicht aus Glas, Emaille oder dicht gesinterter Keramik überzogen sein. Eine Alternative zur Erzeugung von Elektrodenstrukturen besteht in der lokalen Dotierung der Filterkeramik mit Zusätzen zur Erhöhung der elektrischen Leitfähigkeit. Die Kontaktierung der einzelnen Elektroden erfolgt für die Verbindung mit elektrischer Masse und Hochspannung jeweils von gegenüberliegenden Enden des Filters. Sie kann zum Beispiel durch gitterförmige Verbindung der Elektroden aber auch durch eine lochblechartige Kontaktplatte erfolgen, die die eingangs- und ausgangsseitigen Öffnungen der Filterzellen freilässt.

[0017] Die Plasmaregeneration des Filters kann kontinuierlich erfolgen. Die erforderliche mittlere Plasmaleistung wird durch eine mit steigender Filtertemperatur fallende, mit steigender Rußemission steigende Funktion repräsentiert. Statt der Rußemission kann der Abgasgegendruck als Eingangsgröße für die Regelung der mittleren Plasmaleistung verwendet werden. Der Vorteil dieser Methode besteht darin, dass der Abgasgegendruck kontinuierlich niedrig gehalten werden kann. Dadurch wird der Kraftstoffmehrer-

brauch, der bei Verbrennungskraftmaschinen durch steigenden Abgasgegendruck auftreten kann, weitgehend vermieden. Auf der anderen Seite ergibt sich dadurch ein erhöhter Energieaufwand für den Betrieb des Plasmas. Der Energiegehalt von Kohlenwasserstoffen und Ruß wird praktisch nicht für die Regeneration genutzt.

[0018] Eine Alternative besteht deshalb in einer zyklischen Plasmaregeneration. Als Kriterium für die Auslösung und die zur Regeneration eingesetzte Plasmaleistung werden Abgasgegendruck und Filtertemperatur benutzt.

[0019] Um den mittleren Energieaufwand für die Plasmaregeneration zu begrenzen, ist die Dotierung der Filterkeramik mit katalytische Materialien vorgesehen, die die Oxidation von Ruß und Kohlenwasserstoffen fördern. Hier kommen Edelmetalle wie Pt, Metalle wie Fe und Erdalkalimetalle wie Ca in Frage. Auch hier können zwei verschiedene Regenerationsstrategien benutzt werden. Bei kontinuierlicher Plasmaregeneration ergibt sich abhängig von der Temperatur eine mehr oder weniger stark reduzierte elektrische Leistung im Vergleich zur Rußoxidation im nichtkatalytischen Fall. Im Falle zyklischer Regeneration ist eine Plasmaregeneration dann erforderlich, wenn die Filtertemperatur für längere Zeit unterhalb dem für katalytische Regeneration erforderlichen Wert bleibt.

[0020] Die Plasmaregeneration von Rußfiltern kann weiterhin mit Maßnahmen zur Förderung der selektiven katalytischen Reduktion von Stickoxiden mit Ammoniakhaltigen Reduktionsmitteln kombiniert werden. Dazu wird die Elektrodenstruktur so gestaltet, dass auf der Ausgangsseite des Filters dielektrisch behinderte Volumenentladungen anstelle von Oberflächenentladungen brennen. Die dielektrisch behinderten Entladungen konvertieren NO teilweise zu NO₂, das die selektive katalytische Reduktion von NO bei niedrigen Temperaturen unter 200°C induziert.

[0021] Weiterhin kann durch Wahl der katalytischen Dotierung des Filtermaterials die plasmainduzierte katalytische Reduktion von Stickoxiden durch kohlenwasserstoffhaltige Reduktionsmittel im Rußfilter selbst ermöglicht werden. Die Regelstrategie für den Plasmabetrieb ist in beiden Fällen zusätzlich an die Erfordernisse der NO_x-Reduktion anzupassen.

[0022] Weitere Einzelheiten und Vorteile der Erfindung ergeben sich aus der nachfolgenden Figurenbeschreibung von Ausführungsbeispielen in Verbindung mit den Patentansprüchen. Es zeigen jeweils in schematischer Darstellung

[0023] Fig. 1 zwei Schnitte eines Partikelrußfilters gemäß dem Stand der Technik.

[0024] Fig. 2 bis Fig. 4 drei verschiedene Möglichkeiten zur Erzeugung von Oberflächengleitentladungen auf Keramik.

[0025] Fig. 5 Schnitte einer Anordnung gemäß Fig. 1, die mit Mitteln zur Ausbildung der Oberflächengleitentladungen versehen sind.

[0026] Fig. 6 eine graphische Darstellung zur Verdeutlichung des Wirkungsgrades.

[0027] Fig. 7 bis Fig. 12 Schnitte bzw. Ausschnitte von Filterstrukturen mit geeigneten Elektroden zur Ausbildung von Oberflächengleitentladungen, die

[0028] Fig. 13 im Querschnitt einen Partikelfilter mit entsprechenden Strukturen, wobei eine zugehörige Steuereinrichtung vorhanden ist.

[0029] Fig. 14 einen Partikelfilter gemäß Fig. 13 in Kombination mit einem Reaktor zur Durchführung einer selektiven katalytischen Reduktion (SCR) und

[0030] Fig. 15 eine graphische Darstellung zur Auswahl der Spannung für die Gleitentladung als Funktion von Abgasparametern.

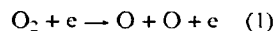
[0031] Gleiche bzw. gleichwirkende Teile haben gleiche

bzw. sich entsprechende Bezugszeichen. Die Figuren werden teilweise gemeinsam beschrieben.

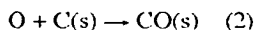
[0032] Dem nachfolgend beschriebenen Verfahren zur Verringerung der Partikelemission liegen folgende Vorstellungen zugrunde:

– Um einen effizienten Abbau durch Oxidation zu gewährleisten, muss der Ruß auf Oberflächen gesammelt werden. Am sichersten wird dies durch die vom Stand der Technik bekannten Rußfilter gewährleistet.

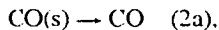
– Eine auch bei niedriger Temperatur effiziente Oxidation kann ohne Zusatz katalytischer Additive nur durch oxidierende Radikale erreicht werden, die in unmittelbarer Nähe der Oberfläche gebildet werden. Das kann durch Elektronenstöße z. B. mit Sauerstoff in einem nichtthermischen Plasma mit gutem Wirkungsgrad induziert werden:



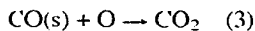
[0033] Die Sauerstoffradikale reagieren mit der Kohlenstoffoberfläche C(s) und bilden dabei oberflächengebundenes Kohlenmonoxid:



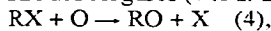
[0034] Das Kohlenmonoxid kann freigesetzt werden



aber auch mit einem weiteren Radikal zu Kohlendioxid reagieren:



[0035] Wenn die Radikale in zu großem Abstand zur Oberfläche erzeugt werden, reagieren sie mit Bestandteilen RX des Abgases (wie z. B. Kohlenwasserstoffen)



bevor sie die Oberfläche erreichen und leisten damit keinen oder nur einen indirekten, stark von der Abgaszusammensetzung abhängigen Beitrag zum Rußabbau.

[0036] Der effizienteste Weg zur Erzeugung nichtthermischer Gasentladungen mit den geforderten Eigenschaften besteht in Oberflächengleitentladungen. Feste, in die Filterkeramik integrierte Elektrodenstrukturen bieten dabei wesentliche Vorteile gegenüber separaten Elektroden oder Schüttbettanordnungen: Sie haben mechanische Stabilität, sind strömungstechnisch günstig und damit kompakt aufbaubar.

[0037] In Fig. 1a ist ein Stand der Technik entsprechenden Rußfilter 10 im Längsschnitt, in Fig. 1b im Querschnitt dargestellt. Der Filter 10 besteht aus Zellen 11 mit Wänden 1 aus offenporigem keramischem Material, die jeweils wechselseitig an einem der Enden durch eine keramische Abdeckung 2 verschlossen sind. Das Abgas E (Exhaust) strömt durch die Seitenwände der Zellen. Der Ruß wird dabei auf der Oberfläche abgeschieden.

[0038] Fig. 2 verdeutlicht das oben beschriebene Verfahren anhand einer Struktur 20 mit zwei in eine Filterkeramik 1 eingebetteten Elektroden 3, die an eine Spannungsquelle 4 zur Erzeugung einer zeitveränderlichen Hochspannung angeschlossen sind. Bei der zeitveränderlichen Hochspannung kann es sich um eine Wechselspannung oder um eine zeitlich repetierende Impulsspannung handeln. Das rußhaltige Abgas E tritt durch die Filterkeramikwand 1. Dabei wird Ruß

an der Filterkeramik 1 abgeschieden. Das rußefilterte Abgas E' tritt auf der Gegenseite aus der Filterkeramik aus. Auf beiden Seiten der Filterkeramik bilden sich Oberflächen-
gleitentladungen SD aus.

[0039] Fig. 3 zeigt eine Struktur 30 mit einer in die Filterkeramik eingebetteten Elektrode 3 und einer aufliegenden Elektrode 5. Hier bildet sich nur auf der Seite der Filterkeramik eine Oberflächengleitentladung SD aus, die mit der Elektrode 5 belegt ist. Dadurch kann die Einkopplung elektrischer Energie auf Bereiche begrenzt werden, in denen Ruß abgeschieden wird.

[0040] Fig. 4 zeigt eine Struktur 40 mit zwei auf gegenüberliegenden Seiten der Filterkeramik 1 aufliegenden Elektroden 5. Wie in der Anordnung nach Fig. 2 kommt es hier zur Ausbildung von Oberflächengleitentladungen auf beiden Seiten der Filterkeramik.

[0041] Fig. 5a zeigt ein plasmaregeneriertes Filter 50 mit eingebetteten Elektroden 3 im Längsschnitt und in Fig. 5b im Querschnitt. Die Elektroden 3 gleicher Polarität sind durch eine Verdrahtung 6 miteinander verbunden. Der Vergleich von Fig. 1 und Fig. 5 zeigt in beiden Fällen eine Wabenstruktur mit wechselseitig an den Enden verschlossenen Zellen.

[0042] Als Filtermaterial kommen in an sich bekannter Weise Cordierit, Siliziumcarbid (SiC), und das sog. NZB ($\text{NaZr}_2\text{P}_3\text{O}_{12}$) in Frage, wobei jeweils Zusätze zur Einstellung der elektrischen Leitfähigkeit vorhanden sind, um geeignete elektrische Eigenschaften zu erreichen.

[0043] Abb. 6 zeigt den experimentellen Nachweis der Oxidation von auf Oberflächen abgeschiedenem Ruß anhand der Bildung von CO und CO_2 durch Oberflächengleitentladungen in Luft bei Zimmertemperatur. Aufgetragen ist auf der Ordinate die Konzentration von Kohlenmonoxid (CO) und Kohlendioxid (CO_2) im Abgas der Oberflächen-
gleitentladungen in ppm und auf der Abszisse die Zeit in Minuten. Dabei kennzeichnet die Kurve 61 den CO- und die Kurve 62 den CO_2 -Gehalt als Funktion der Zeit. Man erkennt, dass beide Kurven nach dem schnellen Anstieg unmittelbar nach dem Einschalten der Oberflächengleitentladungen zum Zeitpunkt 0 weiter langsam ansteigen, ein Maximum durchlaufen und danach wieder abfallen. Der langsame Anstieg ist auf das Ansteigen der Konzentration des an der Rußoberfläche adsorbierten CO(s) bis zu einem Sättigungswert zurückzuführen. Maximum und Abfall auf die stetige Abnahme der adsorbierten Rußmasse durch Oxidation.

[0044] Fig. 7 zeigt den Querschnitt eines plasmaregenerierten Filters 70 mit dielektrisch beschichteten, eingebetteten Elektroden 7 und Gegenelektroden 8. Die dielektrische Beschichtung 9 verhindert den direkten Stromfluss zwischen Elektroden 7 und Gegenelektroden 8. Wahlweise kann auf die dielektrische Beschichtung entweder der Elektroden 7 oder der Gegenelektroden 8 verzichtet werden.

[0045] Fig. 8 zeigt den Querschnitt eines plasmaregenerierten Filters 80 mit Elektrodenstrukturen aus Keramik mit erhöhter Leitfähigkeit sowohl für die Elektroden 81 als auch für die Gegenelektroden 82, die in den Filter integriert sind.

[0046] Fig. 9 zeigt einen Ausschnitt aus einem plasmaregenerierten Filter 90, in dem durch seitlichen Versatz von Reihen gegeneinander in einem Teil der Zellen Oberflächen-
entladungen SD und in einem anderen Teil der Zellen Volumenentladungen VD brennen. Als Beispiel wurden hier nicht dielektrisch beschichtete Elektroden 3 verwendet. Diese Anordnung ist zur Oxidation von RuS auf der einen Seite und Oxidation von NO zu NO_2 auf der anderen Seite der Filterkeramik geeignet.

[0047] Fig. 10 stellt einen Ausschnitt aus einem plasmaregenerierten Filter mit eingebetteten, dielektrisch beschichteten

ten Elektroden 7 und aufliegenden metallischen Elektroden 5 nach dem in Fig. 3 gezeigten Prinzip dar. Fig. 11 stellt einen Ausschnitt aus einem plasmaregenerierten Filter mit aufliegenden metallischen Elektroden 5 nach dem in Fig. 4 gezeigten Prinzip dar. Aus beiden Darstellungen wird deutlich, dass Oberflächengleitentladungen in den Waben eines Wabenkörpers generierbar sind.

[0048] Fig. 12 zeigt einen Ausschnitt aus einem plasmaregenerierten Filter mit eingebetteten Elektroden 81 und offenen Elektroden 82 im Wechsel, die durch Filterkeramik mit lokal erhöhter Leitfähigkeit gebildet werden. Dabei ist der elektrisch leitfähige Bereich der Keramik bei der eingebetteten Elektrode so klein gewählt, dass er vollständig von isolierender Keramik umgeben ist, während er für die Gegenelektrode so groß gewählt wurde, dass an der Oberfläche Bereiche hinreichend hoher elektrischer Leitfähigkeit vorhanden sind.

[0049] In Fig. 13 ist eine Einrichtung zur Anwendung von nichtthermischen Gasentladungen auf Diesel-Abgase mit 200 bezeichnet. In der Einrichtung mit einem Eingang 201 für nicht behandeltes Abgas E(Exhaust) und einem Ausgang 202 für behandeltes Abgas E' befindet sich eine der vorstehend beschriebenen Filteranordnungen. Es ist eine Puls-
spannungsquelle (PVS = Puls Voltage Source) 210 vorhanden, mit der – wie vorstehend beschrieben – eine Hochspannung geeigneter Amplitude und Frequenz erzeugt wird. Die Hochspannungsquelle 210 ist über ein Koaxialkabel 211 mit der Plasmafiltereinheit 212 verbunden, die durch eine elektrisch und thermisch isolierende, stoßdämpfende Matte 213 in die metallische Filterhülle 214 eingepasst ist. Dabei ist der Hochspannung führende Innenleiter des Koaxialkabels über eine Hochspannungsdurchführung 215 mit der Elektroden-
seite 216 der Plasmafiltereinheit 212 verbunden, während die Gegenelektroden-
seite 217 der Plasmafiltereinheit 212 und der Außenleiter mit der als gemeinsamen elektrischen Massepunkt dienenden Filterhülle 214 verbunden sind.

[0050] Ein Steuergerät 220 dient zur Ansteuerung der PVS 210 über ein Steuerkabel 221. Als Eingangsgrößen für das Steuergerät 220 werden insbesondere Druck und Temperatur verwendet. Hierzu sind in der Anordnung vor dem Dieselpartikelfilter zwei Sensoren 222 und 223 für P_{in} und T_{in} und nach dem Dieselpartikelfilter zwei Sensoren 224 und 225 für P_{out} und T_{out} vorhanden. Das Steuergerät 220 kann weiterhin Einrichtungen zum Speichern und Auswerten motorbedingter Kennlinienfelder aufweisen, die über eine Datenleitung 226 von der Motorsteuerung 227 zugeführt werden können.

[0051] In Fig. 14 ist die in Fig. 13 dargestellte Plasmafilter-Einrichtung 200 mit einem Reaktor 250 für eine selektive katalytische Reduktion SCR (= Selective Catalytic Reduction) kombiniert. Zwischen dem Ausgang der Plasmafilter-Einrichtung 200 und dem Eingang des SCR-Reaktors 250 ist eine Einspritzdüse 240 zum Einspritzen eines Reduktionsmittels RA (= Reducing Agent) vorhanden, das mittels einer Pumpe 241 aus einem Vorratstank 242 über eine Druckleitung 243 zugeführt wird. Die Ansteuerung von Pumpe und Ventil erfolgt über eine Regeleinheit 244 auf der Grundlage von Sensor- und Kennliniendaten.

[0052] Zur Regelung der in den Oberflächengleitentladungen umgesetzten mittleren elektrischen Leistung wird nach folgender Strategie vorgegangen: Es wird von einer Mindestleistung P_{min} für einen Druckabfall am Filter unterhalb eines Schwellwertes Δp_1 ausgegangen. Bei Überschreiten von Δp_1 wird die Leistung proportional zur zeitlichen Druckzunahme dp/dt erhöht bis auf einen druck- und temperaturabhängigen Maximalwert $P_{max}(p_{in}/T_{gas})$. Dort wird die Leistung gehalten bis eine Druckabnahme zurück auf den

Schwellwert Δp_1 erfolgt ist. Zur zyklischen Regeneration wird die in den Oberflächengleitentladungen umgesetzte mittlere elektrische Leistung nach folgender Strategie geregelt: Solange der Druckabfall am Filter unterhalb eines Schwellwertes Δp_1 liegt, erfolgt keine Leistungseinkopplung. Bei Überschreiten von Δp_1 wird die Leistung proportional zur zeitlichen Druckzunahme dp/dt erhöht bis auf einen Druck- und Temperaturabhängigem Maximalwert $P_{\text{max}}(p_{\text{in}}/T_{\text{gas}})$. Dort wird die Leistung gehalten bis die Druckabnahme auf den Schwellwert Δp_1 erfolgt ist.

[0053] In Kombination mit Maßnahmen zur Stickoxidreduktion ist diese Regelstrategie kombinierbar mit einer Strategie zur plasmainduzierten Oxidation von NO zu NO₂. Verfahren zur plasmagestützten selektiven katalytischen Reduktion sind dadurch gekennzeichnet, dass bei niedrigen Temperaturen die Reduktion von NO₂ bevorzugt abläuft mit Kohlenwasserstoff als Reduktionsmittel oder im Falle von Ammoniak oder ammoniakhaltigen Reduktionsmitteln NO₂ die Reduktion von NO bei niedrigen Temperaturen ermöglicht. Die Rate R_{ox} der plasmainduzierten Konversion von NO zu NO₂ ist proportional zur mittleren Plasmaleistung. Damit erfolgt die Regelung so, dass die minimale Plasmaleistung P_{min} proportional zur erforderlichen Rate R_{ox} des NO-Umsatzes eingestellt wird, solange keine Regeneration des Rußfilters erforderlich ist. Für den Fall der Regeneration wird das Maximum der für Regeneration und NO-Konversion erforderlichen Leistungen eingestellt.

[0054] Die Leistung wird eingestellt über die Wahl einer geeigneten Spannungsamplitude U_0 und einer geeigneten Frequenz oder Puls wiederholrate f . Es ist bekannt, dass für das Zünden einer Gasentladung eine minimale Spannung, die Zündspannung, erforderlich ist. Oberhalb dieser Zündspannung steigt bei nichtthermischen Gasentladungen des hier eingesetzten Typs die Stromamplitude und damit die pro Puls- oder die pro Periode dissipierte Energie stark an. Um thermische Effekte als Folge hoher elektrischer Leistungsdichten in der Gasentladung zu vermeiden, ist es vorteilhaft, den Strom durch Einstellung einer geeigneten Spannungsamplitude zu begrenzen. Nun variiert die Zündspannung einer Gasentladung stark mit Druck und Temperatur, während die als Quotient aus elektrischer Feldstärke E und Teilchenzahldichte N gebildete reduzierte Zündfeldstärke E/N nur schwach davon abhängt. Eine Regelung der Spannungsamplitude U_0 als Funktion von Druck und Temperatur ist deshalb vorteilhaft. Weiterhin ergibt sich, dass die Spannungsamplitude grob linear mit dem Elektrodenabstand ansteigt. Für praktisch einsetzbare Filter ergeben sich daher minimale Zündspannungen von ca. 3 kV. Spannungen von 20 kV sollten hingegen aus Sicherheitsgründen nicht überschritten werden. Puls wiederholraten oder Frequenzen von mindestens 100 Hz und höchstens 200 kHz sind für diese Anwendung geeignet.

[0055] In Fig. 15 ist eine Kennlinie für das Einstellen einer geeigneten Amplitude für eine Pulsspannung U_0 in kV in Abhängigkeit vom Quotienten $p_{\text{in}}/T_{\text{in}}$ normiert auf Normaldruck p_0 (1013 hPa) und Normaltemperatur T_0 (273,15 K) dargestellt. Vorteilhafterweise ergibt sich in dieser Darstellung eine in etwa linear verlaufende Kennlinie 150, so dass die Steuerung vereinfacht wird. Die Kennlinie 150 ist unmittelbar im Speicher der Kontrolleinrichtung 220 abgespeichert.

[0056] Für elektrische Anregung mit Wechselspannungen gilt sinngemäß das gleiche wie für Anregung mit Pulsspannungen, wobei die Amplituden der Spannungen als Differenz zwischen maximaler und minimaler Spannung (Spitze-Spitze oder pk-to-pk) zu nehmen sind.

[0057] Für den Fachmann ist offensichtlich, dass weitere Kombinationen von Geometrien mit unterschiedlichen

Elektrodentypen möglich sind. Ebenso ist offensichtlich, dass diese Geometrien auch mit katalytischen Materialien zur Förderung der Oxidation kombiniert werden können.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Verminderung kohlenstoffhaltiger Partikelemissionen von Dieselmotoren, wobei das vom Motor emittierte Abgas durch einen Filter strömt, die im Abgas enthaltenen Partikel an Filteroberflächen abgeschieden werden, und wobei zwecks Regeneration des Filters die abgeschiedenen Partikel oxidiert werden, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Regeneration durch nichtthermische, elektrische Oberflächengleitentladungen an den mit Partikeln belegten Oberflächen ausgelöst wird.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Oberflächengleitentladungen zwischen je zwei Elektroden erzeugt werden, die in ein dielektrisches Filtermaterial niedriger elektrischer Leitfähigkeit eingebettet sind.

3. Verfahren nach Anspruch 1 oder Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, dass die Oberflächengleitentladungen erzeugt werden zwischen je einer Elektrode, die in ein dielektrisches Filtermaterial niedriger elektrischer Leitfähigkeit eingebettet ist, und einer Gegenelektrode, die auf der dem einströmenden Abgas zugewandten Filteroberfläche angebracht ist.

4. Verfahren nach Anspruch 2 oder Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, dass das Filtermaterial als dielektrische Barriere ausgelegt ist und dass die Oberflächengleitentladungen erzeugt werden zwischen je einer Elektrode, die auf der dem einströmenden Abgas zugewandten Filteroberfläche angebracht ist, und einer Gegenelektrode, die auf der austrittsseitigen Filteroberfläche angebracht ist.

5. Verfahren nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, dass die elektrische Anregung für die Oberflächengleitentladung durch eine Wechselspannung oder eine periodische Pulsspannung, vorzugsweise mit einer Amplitude zwischen 3 kV und 20 kV (pk-to-pk), und einer Frequenz/Puls wiederholrate zwischen 100 Hz und 200 kHz erfolgt, wobei die elektrische Leistungsregelung durch Anpassung von Amplitude und Frequenz erfolgt.

6. Verfahren nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, dass die Amplitude als Funktion des Quotienten $p_{\text{in}}/T_{\text{gas}}$ vom Druck am Filtereintritt p_{in} und Gastemperatur T_{gas} geregelt wird.

7. Verfahren nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, dass die Frequenz als Funktion von Filterbelegung m_{particle} und Filtertemperatur T_{filter} gewählt wird.

8. Verfahren nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, dass die Filterbelegung m_{particle} aus Druckabfall am Filter Δp bestimmt wird.

9. Verfahren nach Anspruch 1 und 12, dadurch gekennzeichnet, dass die Regeneration kontinuierlich erfolgt.

10. Verfahren nach Anspruch 9 dadurch gekennzeichnet, dass die in den Oberflächengleitentladungen umgesetzte mittlere elektrische Leistung geregelt wird nach folgender Strategie:

- es wird von einer Mindestleistung P_{min} für Druckabfall am Filter $<$ Schwellwert Δp_1 ausgegangen,
- bei Überschreiten von Δp_1 wird die Leistung proportional zur zeitlichen Druckzunahme dp/dt erhöht bis auf einen druck- und temperaturabhän-

gigem Maximalwert $P_{\max}(P_{\text{in}}/T_{\text{gas}})$, die Leistung wird dort gehalten, bis Druckabnahme auf Schwellwert Δp_1 erfolgt ist,

11. Verfahren nach Anspruch 1 und 8, dadurch gekennzeichnet, dass die Regeneration zyklisch erfolgt. 5

12. Verfahren nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, dass die in den Oberflächengleitentladungen umgesetzte mittlere elektrische Leistung geregelt wird nach folgender Strategie:

es wird von einem Leistungswert 0 für einen Druckabfall am Filter $<$ Schwellwert Δp_1 ausgegangen. 10

bei Überschreiten von Δp_1 wird die Leistung proportional zur zeitlichen Druckzunahme dp/dt erhöht und zwar bis zum druck- und temperaturabhängigen Maximalwert $P_{\max}(P_{\text{in}}/T_{\text{gas}})$. 15

die Leistung wird dort gehalten, bis die Druckabnahme auf den Schwellwert Δp_1 erfolgt ist.

13. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass nach Minderung der Partikelemission durch nichtthermische Gasentladungen auf der Ausgangsseite des Partikelfilters Stickstoffmonoxid NO zu Stickstoffdioxid NO₂ konvertiert wird und danach eine selektive katalytische Reduktion der Stickoxide erfolgt. 20

14. Verfahren nach Anspruch 13, dadurch gekennzeichnet, dass das für die selektive katalytische Reduktion erforderliche Reduktionsmittel nach dem Partikelfilter und vor dem Reduktionskatalysator zudosiert wird. 25

15. Anordnung zur Durchführung des Verfahrens nach Anspruch 1 oder einem der Ansprüche 2 bis 12, mit einem keramischen Rußfilter und Mitteln zum Oxidieren der am keramischen Filter abgeschiedenen Partikel, dadurch gekennzeichnet, dass die Mittel zur Oxidation der Partikel elektrische Oberflächengleitentladungen an der Keramik des Filters bereitstellen. 30

16. Anordnung nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, dass zur Bereitstellung der elektrischen Oberflächengleitentladungen Elektrodenstrukturen bestehend aus Elektroden und Gegenelektroden vorhanden sind, die zumindest teilweise in den Filter integriert sind. 35

17. Anordnung zur Durchführung des Verfahrens nach Anspruch 12 oder Anspruch 13, mit einem keramischen Rußfilter und Mitteln zum Oxidieren der am keramischen Filter abgeschiedenen Partikel, Mitteln zum Oxidieren gasförmiger Schadstoffe, Mitteln zur Zudosierung eines Reduktionsmittels in den Abgasstrom und Mitteln zur selektiven katalytischen Reduktion von Stickoxiden, dadurch gekennzeichnet, dass die Mittel zur Oxidation der Partikel elektrische Oberflächengleitentladungen an der Keramik des Filters und die Mittel zur Oxidation der gasförmigen Schadstoffe dielektrisch behinderte Entladungen im Auslass-seitigen Volumen des Filters bereitstellen. 40 45 50 55

18. Anordnung nach Anspruch 17, dadurch gekennzeichnet, dass zur Bereitstellung der Oberflächengleitentladungen und der dielektrisch behinderten Entladungen Elektrodenstrukturen bestehend aus Elektroden und Gegenelektroden vorhanden sind, die zumindest teilweise in den Filter integriert sind. 60

19. Anordnung nach Anspruch 16 oder Anspruch 18, dadurch gekennzeichnet, dass von den Elektrodenstrukturen zumindest jeweils eine der Elektroden in die Keramik des Filters eingebettet ist. 65

20. Anordnung nach Anspruch 16 oder Anspruch 18, dadurch gekennzeichnet, dass die Elektroden in die

Keramik eingebettet sind und die Gegenelektroden auf der Keramik aufliegen.

21. Anordnung nach Anspruch 15 oder Anspruch 17, dadurch gekennzeichnet, dass der Filter aus zu einer Wabenstruktur zusammengesetzten Zellen mit rechteckigem Querschnitt besteht, die je wechselseitig an den Enden verschlossen sind, wodurch die Zellen entweder zum Abgaseinlass oder zum Auslass des Filters hin offen sind.

22. Anordnung nach Anspruch 21, dadurch gekennzeichnet, dass die Zellen innerhalb der Wabenstruktur in Zeilen angeordnet sind, wobei benachbarte Zeilen um jeweils die halbe Zellbreite gegeneinander verschoben sind.

23. Anordnung nach Anspruch 15 oder Anspruch 17, dadurch gekennzeichnet, dass der Filter aus poröser Keramik aus Cordierit, SiC (Silizium-Carbid) oder NZP (NaZr₂P₃O₁₂) mit Zusätzen zur Einstellung der elektrischen Eigenschaften (Leitfähigkeit) und zur katalytischen Rußoxidation besteht.

24. Anordnung nach Anspruch 16 oder Anspruch 18, dadurch gekennzeichnet, dass die Elektrodenstrukturen metallische Elektroden mit dielektrischem Überzug aufweisen.

25. Anordnung nach Anspruch 16 oder Anspruch 18, dadurch gekennzeichnet, dass die Elektrodenstrukturen 22 durch Filtermaterial erhöhter Leitfähigkeit gebildet werden.

26. Anordnung nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, dass eine Pulsspannungsquelle mit regelbarer Spannungsamplitude und Pulswiederholrate zur Versorgung der Oberflächengleitentladungen, Sensoren zur Messung der Temperaturen und Drücke vor und nach dem Filter, und eine Steuerung mit Eingängen für die Mess-Signale der Temperatur- und Druckmessungen und in nichtflüchtigen Speichern abgelegten Regelkennlinien zur Regelung von Spannungsamplitude und Pulswiederholrate als Funktionen der Temperaturen und Drücke vorhanden sind.

27. Anordnung nach Anspruch 17, dadurch gekennzeichnet, dass eine Pulsspannungsquelle mit regelbarer Spannungsamplitude und Pulswiederholrate zur Versorgung der Oberflächengleitentladungen und der dielektrisch behinderten Entladungen, Sensoren zur Messung der Temperaturen und Drücke vor und nach dem Filter, Mittel zur Bestimmung der NO-Konzentration im Abgas, und eine Steuerung mit Eingängen für die Mess-Signale der Temperatur- und Druckmessungen sowie der Informationen zur NO-Konzentration und in nichtflüchtigen Speichern abgelegten Regelkennlinien zur Regelung von Spannungsamplitude und Pulswiederholrate als Funktionen der Temperaturen, der Drücke und der NO-Konzentration vorhanden sind.

Hierzu 7 Seite(n) Zeichnungen

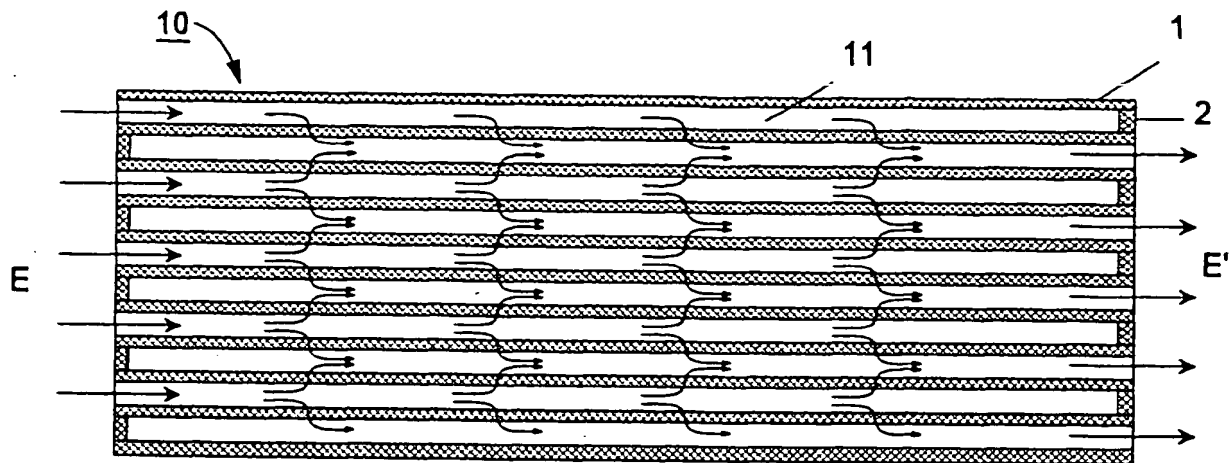


FIG 1a

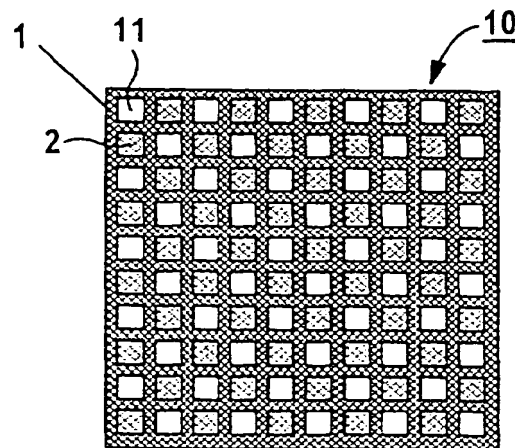


FIG 1b

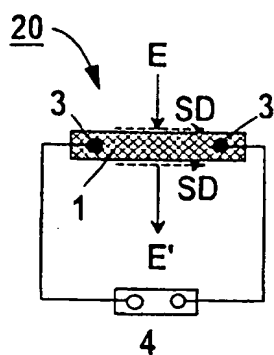


FIG 2

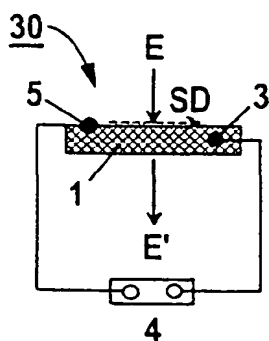


FIG 3

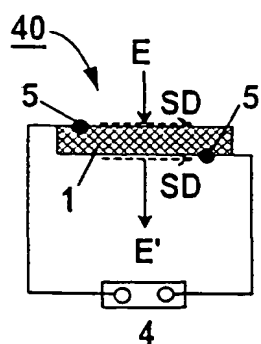
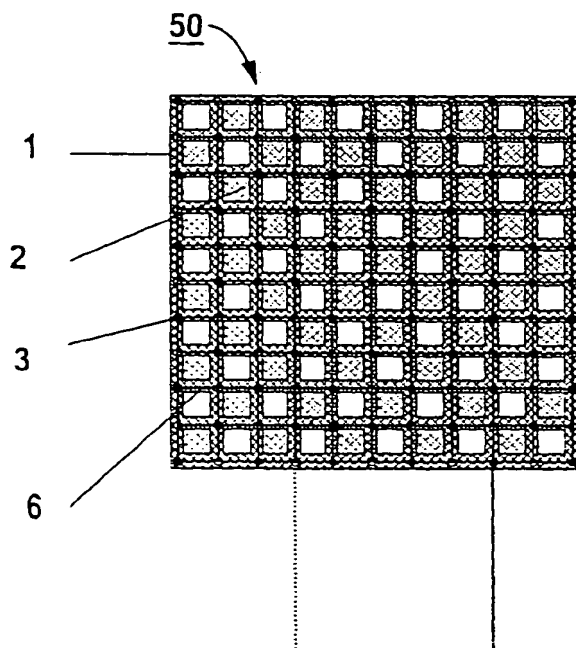
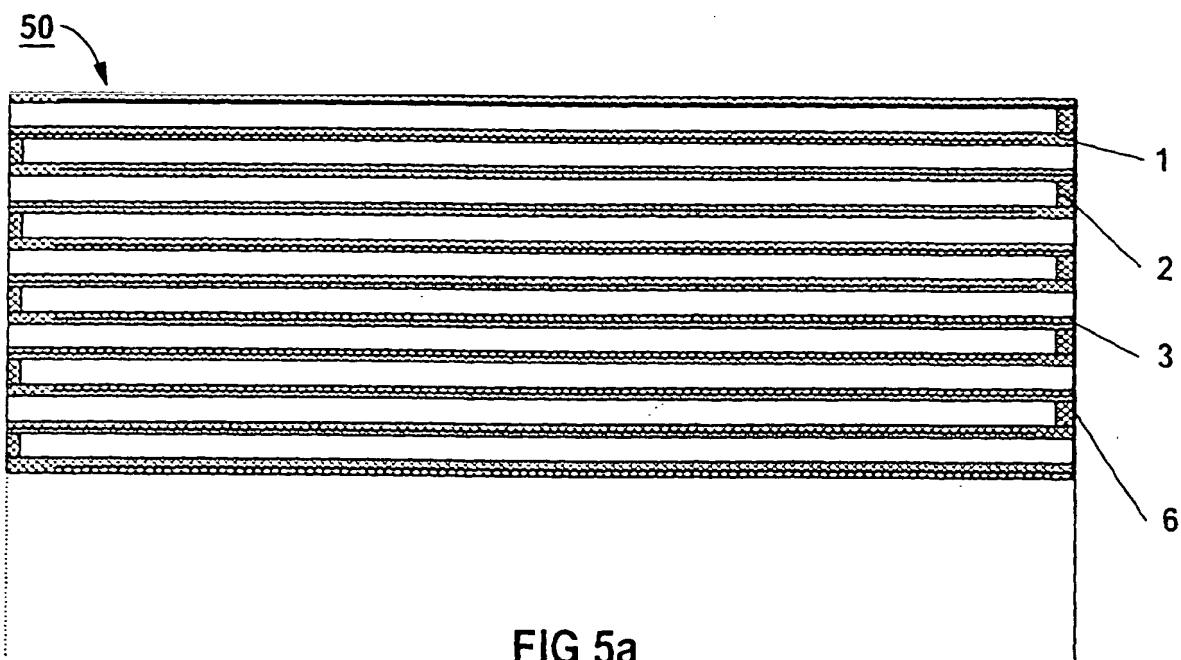


FIG 4



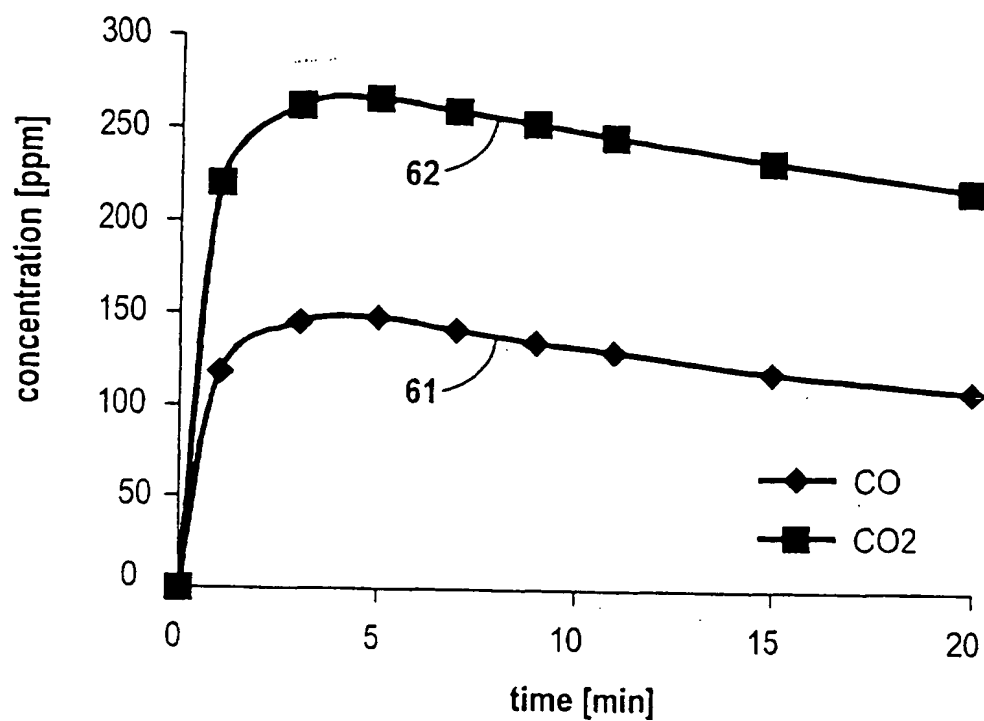


FIG 6

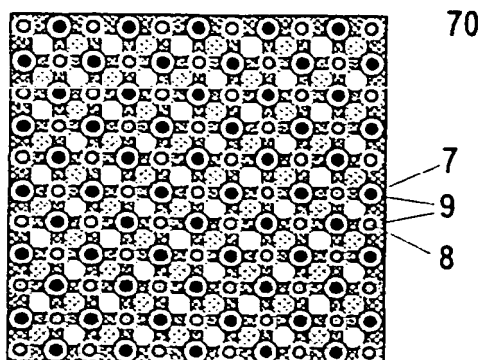


FIG 7

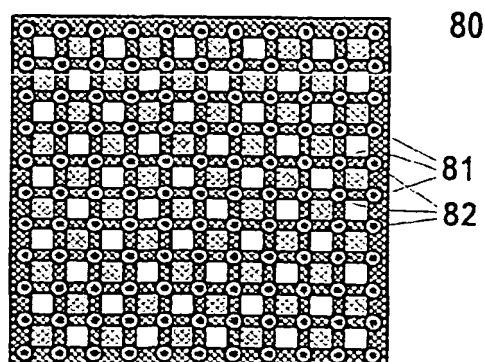


FIG 8

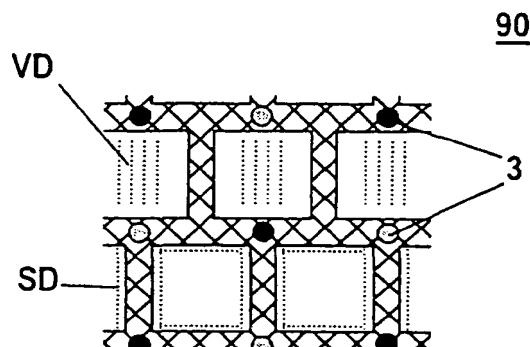


FIG 9

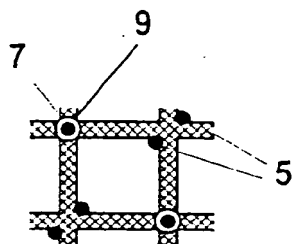


FIG 10

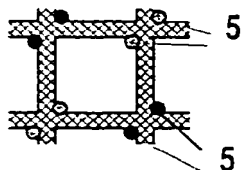


FIG 11

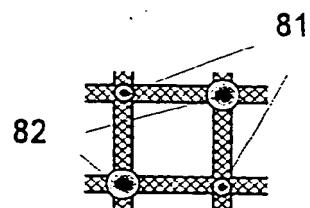


FIG 12

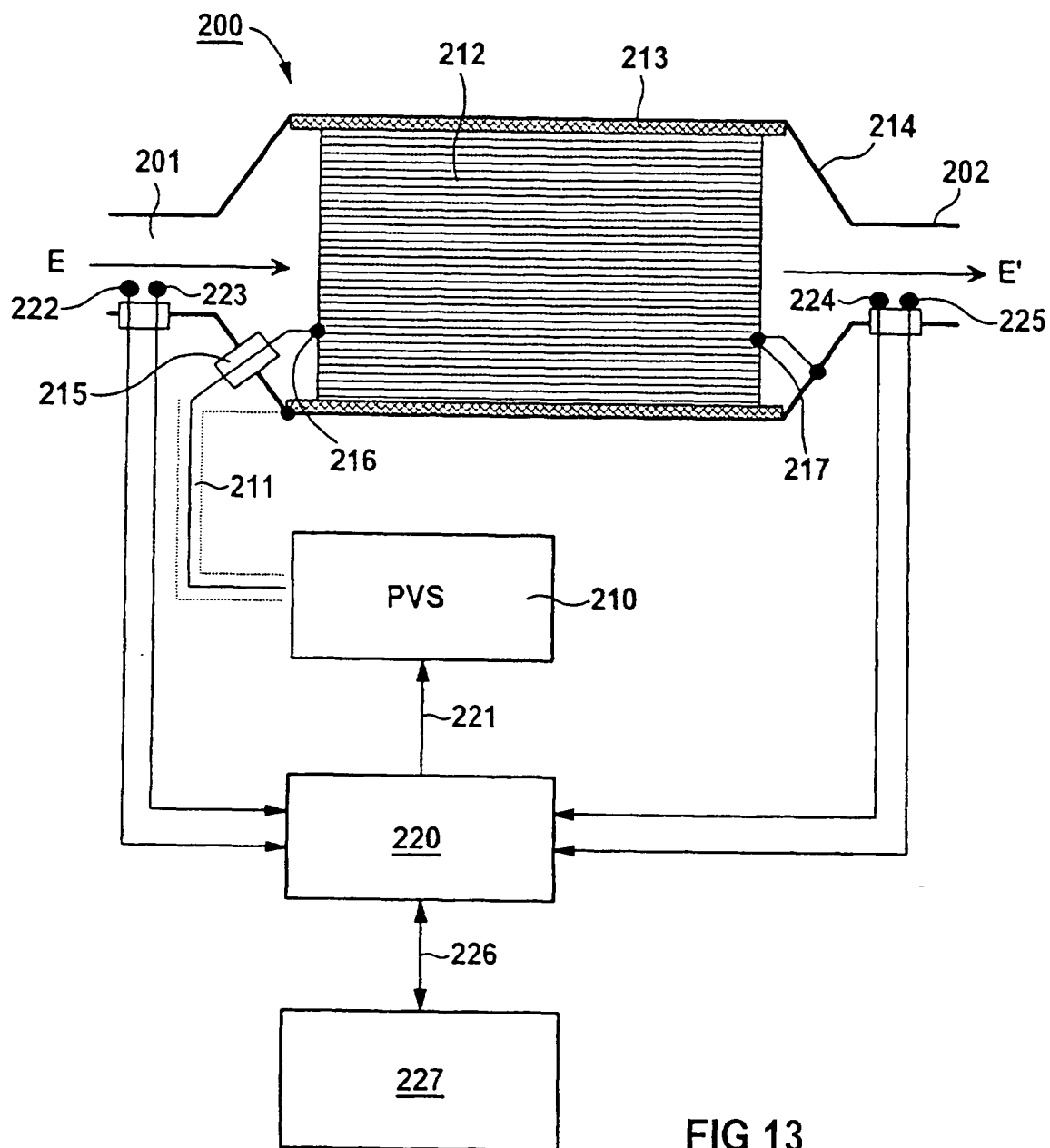


FIG 13

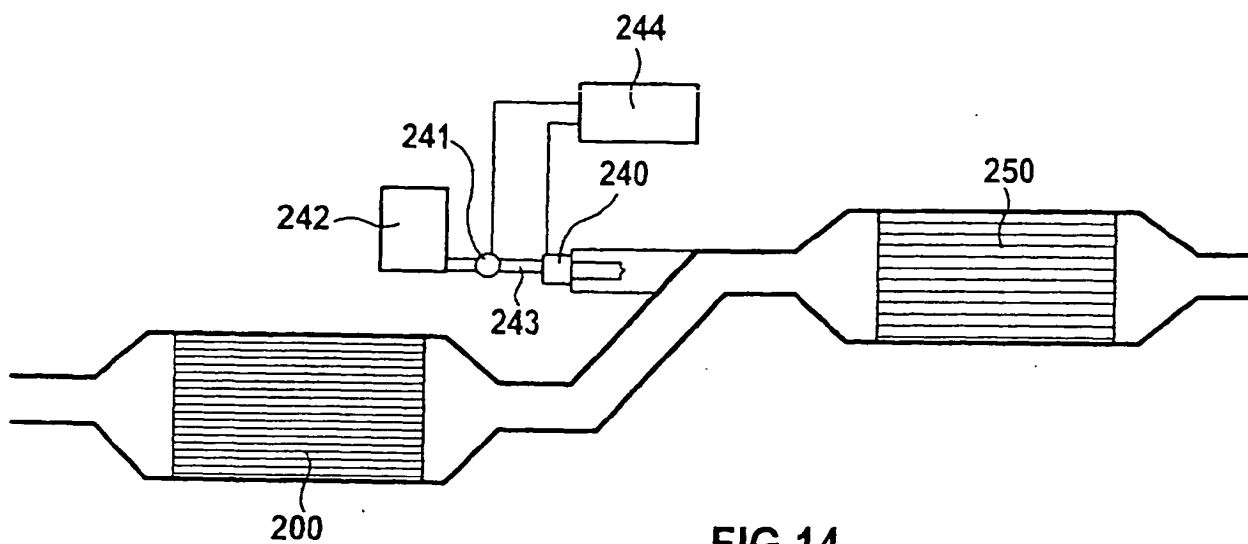


FIG 14

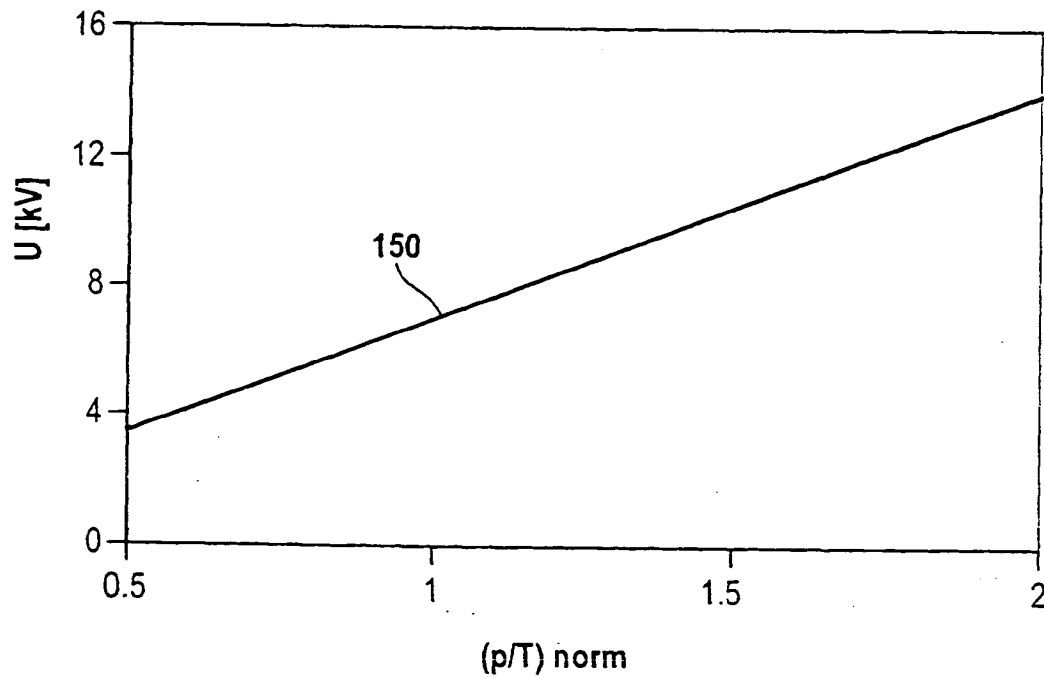


FIG 15